

Micromixer for electrochemical preparations

Patent number: EP1217099
Publication date: 2002-06-26
Inventor: ZIOGAS ATHANASSIOS DR (DE)
Applicant: CPC CELLULAR PROCESS CHEMISTRY (DE)
Classification:
 - international: C25B9/06
 - european: C25B9/06, B01J19/00R
Application number: EP20010129827 20011214
Priority number(s): DE20001064417 20001221

Also published as:
 EP1217099 (A3)
 DE10064417 (A1)

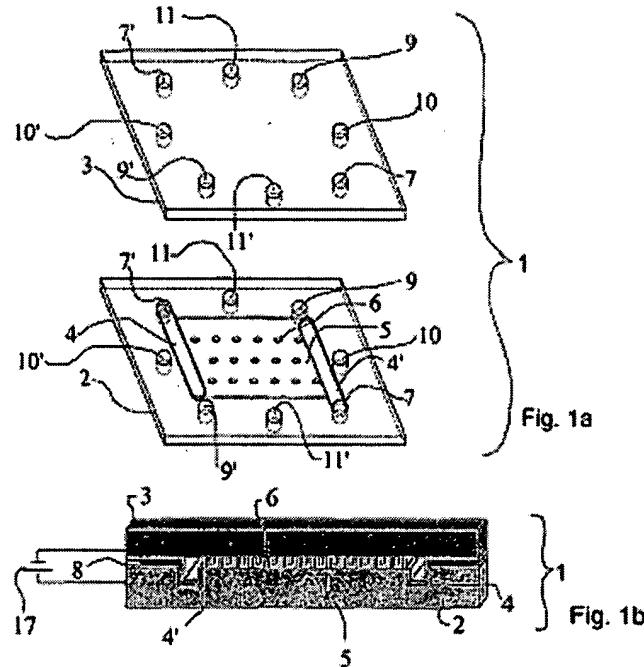
Cited documents:
 WO9832008
 DE19841302
 US4652356

Abstract of EP1217099

Micromixer has two electrodes plane-parallel to each other with at least one electrode having an insulating layer connected to its surface.

Independent claims are also included for:

- 1) A process for the production of a micromixer comprises:
 - (1) structuring the electrode surface by inserting grooves and bores into the electrode material;
 - (2) forming a mask having recesses on sites on which the electrode surface is to be coated with insulating material and applying the insulating material by the mask onto at least one electrode surface and removing the mask or applying a flat insulating layer onto the electrode surface and partially removing the insulating coating material;
 - (3) optionally forming heat exchanger elements by structuring heat exchanger plates analogous to the first step;
 - (4) joining both electrodes and optionally the heat exchanger elements and/or separating walls; and
 - (5) connecting a current supply and optionally sensors.
- 2) A modular system for producing the micromixer.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide



(19)

Europäisches Patentamt
European Patent Office
Office européen des brevets



(11)

EP 1 217 099 A2

(12)

EUROPÄISCHE PATENTANMELDUNG

(43) Veröffentlichungstag:
26.06.2002 Patentblatt 2002/26

(51) Int Cl.7: C25B 9/06

(21) Anmeldenummer: 01129827.0

(22) Anmelddatag: 14.12.2001

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LI LU
MC NL PT SE TR

Benannte Erstreckungsstaaten:
AL LT LV MK RO SI

(30) Priorität: 21.12.2000 DE 10064417

(71) Anmelder: CPC Cellular Process Chemistry
Systems GmbH
55131 Mainz (DE)

(72) Erfinder: Ziogas, Athanassios, Dr.
55122 Mainz (DE)

(74) Vertreter: Kompter, Hans-Michael, Dr.
Spessartring 63
64287 Darmstadt (DE)

Bemerkungen:

Die Anmeldung wird, wie ursprünglich eingereicht,
unvollständig veröffentlicht (Art. 93 (2) EPÜ).

(54) Mikroreaktor für elektrochemische Umsetzungen

(57) Die Erfindung betrifft einen Mikroreaktor für
elektrochemische Umsetzungen, welcher mindestens
zwei planparallel zueinander angeordnete Elektroden

aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine
Elektrode mit einer definiert ausgestalteten, fest mit
der Elektrodenoberfläche verbundenen Isolations-
schicht versehen ist.

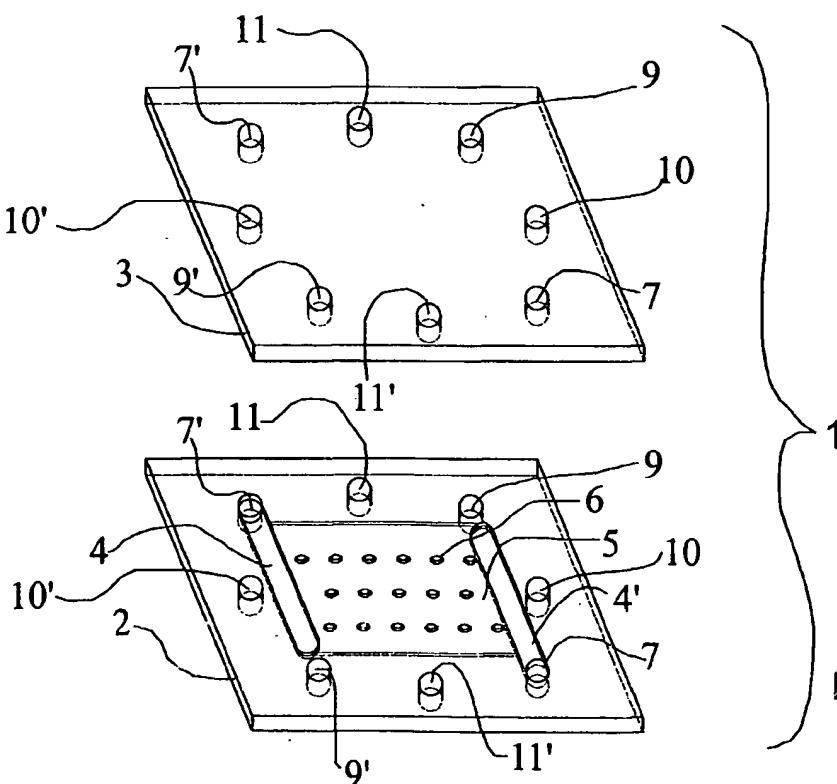
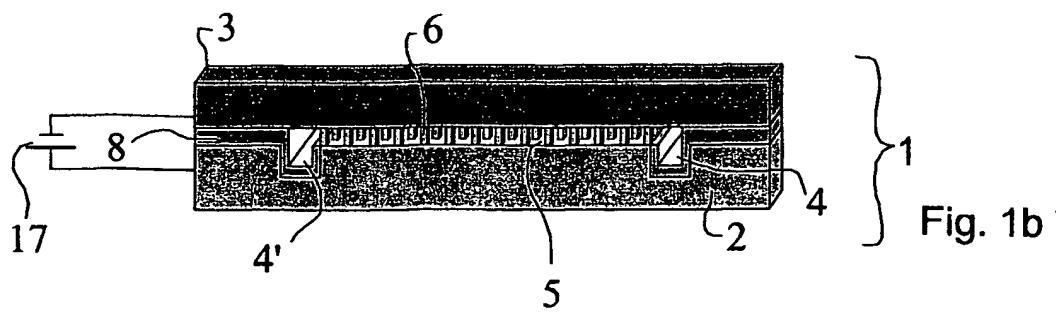


Fig. 1a



Beschreibung

[0001] Die Erfindung bezieht sich auf einen Mikroreaktor für elektrochemische Umsetzungen, welcher mindestens zwei planparallel zueinander angeordnete Elektroden aufweist, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine Elektrode mit einer definiert ausgestalteten, fest mit der Elektrodenoberfläche verbundenen Isolationsschicht versehen ist.

5 [0002] Elektrochemische Reaktoren bzw. Zellen, bei denen der Elektrolyt zwischen den Oberflächen zweier gegenüberliegender Elektroden strömt, sind für den Einsatz bei organischen Synthesen in Lösungen mit kleiner elektrolytischer Leitfähigkeit bekannt.

10 [0003] F. Beck und H. Guthke beschreiben zum Beispiel in Chemie-Ingenieur-Technik, Heft 17, 1969, Jahrgang, Seiten 943-950 bzw. US 4,406,768 eine Kapillarspalt-Zelle, bei der kreisförmige Platten bipolar in Serie geschaltet sind. Der Elektrolyt wird durch eine Bohrung in der Mitte der kreisförmigen Platten eingeführt. Die Reaktionsmischung strömt radial zwischen den Elektroden hindurch, rieselt an der Außenseite des Elektrodenstapels herab und wird einem externen Kühler zugeleitet.

15 [0004] Diese Kapillarspalt-Zelle weist folgende Nachteile auf:
Aufgrund der radialen Fluidführung ist die Strömungsgeschwindigkeit Innen verschieden zu Außen. Dadurch erfolgt Querdiffusion, eine ungünstigere Verweilzeitverteilung und damit verschlechterte Selektivität. Zudem tritt durch großflächige "Spacer" ein Verlust an effektiver Elektrodenoberfläche auf, wodurch ein ungünstigeres Verhältnis von effektiver Elektrodenoberfläche zu Zellvolumen entsteht.

20 Weiterhin hat der große Elektrodenabstand zur Folge, dass entweder viel Leitsalz zugesetzt werden muss oder ein hoher ohmscher Widerstand überwunden werden muss. Dadurch entsteht hoher ohmscher Energieverlust und geringe Stromausbeute.

25 Zudem ist keine direkte Wärmeübertragung in der elektrochemischen Zelle möglich, also dort, wo eine Wärmezu- bzw. -abfuhr benötigt wird.

[0005] Die deutsche Patentanmeldung DE 25 02 840 und die Internationale Patentanmeldung WO 00/15872 schlagen elektrochemische Zellen vor, bei denen zwischen planparallelen Elektroden durch nicht-leitende Abstandhalter, insbesondere Folien, Spalten bzw. Kanäle gebildet werden, in denen die elektrochemische Umsetzung stattfinden soll.

25 [0006] Diese Zellen weisen folgende Nachteile auf:

- Komplizierte und umständliche Fertigung des Reaktors, da das Strukturieren und Positionieren einer Folie zwischen zwei Platten in einem gesonderten Fertigungsschritt notwendig ist.
- Schwierige Handhabung der sehr dünnen Folie; da diese nicht fest mit den Elektroden verbunden ist, wodurch ein Verrutschen und Beschädigung der Folie möglich ist. In der Folge können Schatten, Feldinhomogenitäten und Veränderungen der Kanalgeometrien und unterschiedliche Verweilzeiten auftreten. Auch verschlechtert sich dadurch die Selektivität. Im Extremfall besteht die Gefahr eines Kurzschlusses. Zudem können sehr leicht Undichtigkeiten auftreten.

35 [0007] Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Mikroreaktorsystem für elektrochemische Umsetzungen zu schaffen, das die Nachteile der bekannten Systeme vermeidet.

40 [0008] Der erfindungsgemäße Mikroreaktor soll hohe Selektivität bei gleichzeitig hoher effektiver Elektrodenoberfläche erzielen, wobei man einen höheren Stoffumsatz bei gleichbleibender Stromdichte erhält. Dadurch können im Betrieb höhere Ausbeuten, weniger unerwünschte Nebenprodukte und damit geringerer Aufwand zu deren Trennung und Entsorgung erzielt werden.

45 [0009] Zudem wird eine hohe Stromausbeute sowie ein einfacher und effektiver Wärmeaustausch gefordert; der Reaktor soll aufgrund der Verwendung nur weniger Elemente und einfacher Bearbeitung einfach und kostengünstig zu fertigen sein und einen möglichst geringen, aber exakt definierten und konstanten Elektrodenabstand aufweisen.

50 [0010] Die gestellte Aufgabe wird aufgrund der Merkmale des Anspruchs 1 gelöst und durch die weiteren Merkmale der Unteransprüche ausgestaltet und weiterentwickelt.

[0011] Gegenstand der Erfindung ist somit ein Mikroreaktor für elektrochemische Umsetzungen, welcher mindestens zwei planparallel zueinander angeordnete Elektroden aufweist, wobei mindestens eine Elektrode mit einer definiert ausgestalteten, fest mit der Elektrodenoberfläche verbundenen Isolationsschicht versehen ist.

[0012] Weitere Gegenstände der Erfindung sind ein modular aufgebautes System zur Herstellung eines solchen Mikroreaktors aus einzelnen Funktionsmodulen, durch deren Kombination mit möglichst wenigen unterschiedlichen Platten einfach und preiswert eine große Vielfalt von Mikroreaktoren zusammengestellt werden kann, sowie ein Verfahren zu dessen Herstellung. Weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Durchführung elektrochemischer Reaktionen mit Hilfe des erfindungsgemäßen Mikroreaktors.

55 [0013] Der definiert ausgestaltete Verbund aus Elektrodenoberfläche und Beschichtung dient gleichzeitig als Abstandhalter zwischen den Elektroden, zur genauen Definition eines Reaktionsraumes und als Isolator zwischen den Elektroden.

[0014] Im einzelnen werden Reaktionsräume für elektrochemische Reaktionen gebildet, die sich im Hinblick auf die durchzuführende elektrochemische Prozessführung geeignet zusammenstellen lassen und miteinander verbunden werden können. Mit wenigen unterschiedlichen Funktionseinheiten können Mikroreaktoren zusammengestellt werden, die einer Vielzahl von Anforderungen genügen. Soll beispielsweise die Ausbringungsmenge erhöht werden, so können

5 mehrere identische Funktionseinheiten so gestapelt werden, dass eine Vielzahl paralleler Reaktionsräume mit lediglich einer Zu- bzw. Abfuhr entsteht. Soll hingegen eine verlängerte Reaktionszeit erzielt werden, so können identische Funktionseinheiten auch so kombiniert werden, dass eine Serie von identischen Reaktionsräumen entsteht. Die modulare Bauweise ermöglicht einen äußerst flexiblen Aufbau und dadurch die einfache Anpassung an die jeweils auftretenden Bedingungen auch wechselnder Art, indem einzelne Elemente des Mikroreaktors austauschbar sind, um

10 den Erfordernissen der gewählten Reaktion zu genügen oder wenn sich die erhofften Ergebnisse nicht einstellen oder wenn Defekte auftreten.

[0015] Durch Austausch von Komponenten kann man die Fluidführung schließlich so dimensionieren, dass sich eine verbesserte Temperaturlösung der Reaktionen einstellt, und/oder dass eine höhere Selektivität und eine verringerte Bildung unerwünschter Nebenprodukte beobachtet wird, d. h. dass man das erwünschte Produkt mit weniger Verunreinigungen erhält.

[0016] Die Dimensionen und Formgebung des erfindungsgemäßen Mikroreaktors sind an sich unkritisch. Definitionsgemäß ist bei einem elektrochemischen Mikroreaktor der Abstand zwischen Anode und Kathode kleiner als 1 mm.

[0017] Die einzelnen Elektroden, Platten oder Schichten können in jeder geometrischen Form vorliegen. Vorzugsweise sind sie rund, oval, quadratisch oder rechteckig. Quadratische oder rechteckige Elektroden und Platten sind im Hinblick auf ihre Positionierbarkeit besonders bevorzugt.

25 1. Von grundlegender Bedeutung für richtiges Funktionieren eines Mikroreaktors ist die Ausbildung von elektrisch isolierenden Abstandshaltern zwischen den Elektrodenoberflächen. Bei dem erfindungsgemäßen Mikroreaktor wird zu diesem Zweck mindestens eine gegebenenfalls zuvor speziell strukturierte Elektrodenoberfläche entweder durch gezieltes Auftragen einer Isolationsschicht über eine Maske auf oder durch gezieltes Entfernen von Teilen einer zuvor flächendeckend auf mindestens eine gegebenenfalls zuvor speziell strukturierte Elektrodenoberfläche aufgebrachten und mit ihr fest verbundenen, isolierenden und dichtenden Beschichtung mindestens ein Reaktionsraum definiert.

30 [0018] Besonders bevorzugt sind folgende Ausführungsformen:

(A) Mikroreaktoren umfassend

- 35 a. mindestens eine Arbeitselektrode (2);
 b. mindestens eine Gegenelektrode (3);
 c. Vorrichtungen zum Zu- und Abführen (4, 4', 7, 7', 9, 9') von Reaktanten und Produkten.

(B) Mikroreaktoren, wobei die isolierende Beschichtung (8) der beschichteten Elektrode (2) an einer oder mehreren Stellen (5), die mit den Vorrichtungen (c) in Verbindung stehen, entfernt ist.

40 (C) Mikroreaktoren, wobei die beschichtete Elektrode

- 45 a. mindestens eine Rinne (4) zur Verteilung des Edukts; und
 b. mindestens eine Rinne (4') zum Sammeln des Produkts; sowie
 c. mindestens eine die beiden Rinnen (4,4') verbindende Rinne oder strukturierte Fläche (5) aufweist, und wobei

50 die Bereiche (i) und (ii) vollständig beschichtet sind, und im Bereich (iii) die Oberfläche der Elektrode teilweise freigelegt ist.

(D) Mikroreaktoren, wobei die Beschichtung im Bereich (iii) so ausgestaltet ist, dass ein die beiden Rinnen (4, 4') verbindender Raum (5) entsteht, auf der an mehreren Stellen Abstandhalter (6) ausbildende Teile der Beschichtung vorhanden sind, wobei insbesondere die Form der Abstandhalter (6) zur Optimierung der Strömungsverteilung entsprechend gestaltet wird.

55 (E) Mikroreaktoren, wobei mindestens eine der Elektroden mit einem Wärmetauscher (12) oder einem Peltierelement versehen ist.

Zur gezielten Einstellung der Reaktionstemperatur kann jede Elektrode mit einem oder auch einem zweiten Tem-

perierelement, beispielsweise einem Wärmetauscher oder einem Peltierelement, versehen werden. Die Elektrodenrückseite bildet dabei stets eine der Wände des Wärmetauschers.

Die Wärmetauscherstrukturen können gegebenenfalls in die Rückseiten der Platten eingearbeitet sein, auf deren Vorderseite die Strukturen für die Führung des Reaktionsmediums eingearbeitet sind. In diesem Fall kann auf eine Strukturierung der anliegende Platte verzichtet werden. Aufgrund der kleinen Elektrodenabstände und des dementsprechend hohen Verhältnisses von Oberflächen zu Volumen wird eine schnelle Wärmeübertragung und damit die Vermeidung des Auftretens starker Temperaturunterschiede in der Reaktionslösung ermöglicht. Der Einsatz von Sensoren zur Temperaturmessung zur exakten Kontrolle der Reaktionstemperatur ist vorgesehen. Das Temperieren der Reaktionszelle ist in einem Bereich von -80 bis +300 °C möglich.

Als Material für die Wärmeaustauscher kommen Metall (Edelstahl), Glas, Keramik, Halbleitermaterial, insbesondere auf der Basis von Silizium, sowie Kunststoffe in Betracht. Die Auswahl dieser Werkstoffe oder von Kombinationen davon richtet sich nach dem vorgesehenen Verwendungszweck. Ganz besonders bevorzugt ist Edelstahl.

(F) Mikroreaktoren, wobei Anoden- und Kathodenraum durch Einbringen einer Trennwand (15) voneinander getrennt sind.

Die Konstruktion der Elektrodenoberflächen erlaubt die einfache Einbringung einer Trennwand (Diaphragma, (ionenaustauscher-)Membran) zwischen den Elektroden ohne hohen technischen und wirtschaftlichen Aufwand. Diese erlaubt den diffusiven Transport oder den Austausch lediglich einiger Bestandteile des Anolyten bzw. des Katholyten, während andere zurückgehalten werden:

Zwei beschichtete und strukturierte Elektroden werden umgekehrt aufeinandergelegt und eine Trennwand so dazwischen positioniert, dass der solche entstehende Reaktionsraum in einen Anoden- und einen Kathodenraum geteilt wird (siehe Fig. 3).

(G) Mikroreaktoren, wobei die isolierte Beschichtung (8) eine Höhe von weniger als 100 µm, vorzugsweise 25 bis 75 µm, insbesondere etwa 50 µm aufweist.

Sind die Abstände zwischen zwei Elektroden groß und die Transportwege zwischen ihnen lang, verlaufen diffusionskontrollierte Reaktionen dementsprechend langsam. Der erfindungsgemäße Reaktor mit Fluidschichtdicken \leq 100 µm löst dieses Problem, da aufgrund des kleinen Elektrodenabstandes der Abstand der Diffusionsgrenzschichten kleingehalten wird und dementsprechend die Reaktion beschleunigt wird.

Für viele Elektrolytsysteme überlappen die Diffusionsgrenzschichten von Anode und Kathode bei Elektrodenabständen im µm-Bereich. Hierdurch wird der Anteil des Elektrolyten am Gesamtwiderstand eliminiert. Der Gesamtwiderstand setzt sich dann im wesentlichen nur noch aus den Widerständen der Diffusionsgrenzschichten von Anode und Kathode und den Reaktionswiderständen zusammen. Wenn der Abstand der Elektroden kleiner ist als die Dicke der Diffusionsgrenzschichten, sinkt der Diffusionswiderstand und steigt die Diffusionsgeschwindigkeit und damit die Reaktionsgeschwindigkeit diffusionskontrollierter Reaktionen. Dies erlaubt den Einsatz von Elektrolytsystemen mit geringer Leitsalzkonzentration oder völligen Verzicht auf Leitsalz.

Dies ist insbesondere bei Systemen mit kleiner elektrolytischer Leitfähigkeit, beispielsweise organischen Lösungsmitteln in der elektroorganischen Synthese, von enormem Vorteil. Vorteilhaft können daher ohmsche Wärmeverluste und damit das Auftreten unerwünschter Neben- oder Folgereaktionen verminder werden sowie Einsparungen durch geringeren Energieverbrauch, durch niedrige Leitsalzkonzentrationen und die dadurch resultierende niedrige Leitsalztrennkosten erzielt werden.

(H) Mikroreaktoren, wobei die Elektroden monopolar oder bipolar geschaltet sein können.

Durch den Einbau zusätzlicher Platten können Stapel von Elektroden, Wärmetauschereinheiten und Diaphragmen in beliebiger Kombination erzeugt werden.

In einer zusätzlichen Ausführungsform werden an der Ober- und Unterseite strukturierte Platten verwendet. In diesem Fall können die Elektrodenrückseiten z.B. gleichzeitig als Wärmetauscher fungieren.

Die Elektroden des erfindungsgemäßen Mikroreaktors werden von einer Stromquelle mit Strom versorgt. Für eine gute Verbindung der Elektroden mit der Stromquelle sind Materialien mit sehr guter elektrischer Leitfähigkeit wie Kupfer oder Kupferlegierungen (Messing) besonders geeignet, da der ohmsche Widerstand in elektrischen Stromkreisen durch solche Materialien extrem klein gehalten wird.

Besonders vorteilhaft wirkt die Reaktionsraumgestaltung auf die Stromverteilung. Die zu der planaren Elektrodenoberfläche senkrecht stehende Isolierschicht grenzt den Zwischenelektrodenraum ab und eliminiert Kantereinflüsse. Die Abstandhalter stehen senkrecht zu Arbeits- und Gegenelektrode, so dass zwischen den Elektroden eine vorteilhafte homogene Stromdichtenverteilung stattfindet. Diese ist eine wichtige Voraussetzung für gute Stoff- und Stromaustausche und besonders hohe Selektivitäten.

(I) Mikroreaktoren, wobei sich die einzelnen Bestandteile in einer dichtenden Vorrichtung befinden, welches im wesentlichen aus einem Bodensegment, seitlichen Führungen und einem Deckelsegment besteht, wobei die einzelnen Segmente Öffnungen zur Zu- und Abführung von Reaktanten, Produkten und/oder Wärmetauschermedien aufweisen können.

5 Der Stapel der Elektroden und sonstigen Schichten oder Platten wird in der Regel von einer Vorrichtung, vorzugsweise von einem Gehäuse umschlossen, welche auch die Stromversorgung und die fluidischen Anschlüsse für die zu verarbeitenden Medien sowie die Abfuhr des erwünschten Produktes enthalten. Diese Vorrichtung selbst können als Spannvorrichtung ausgebildet sein, oder gesonderte Spannvorrichtungen sorgen dafür, dass es zur ausreichenden Flächenpressung zwischen den einzelnen Elektroden, Platten oder Schichten kommt, um 10 deren Dichtigkeit zu gewährleisten.

[0019] Als Kathodenmaterialien können Blei, Bleilegierungen, Kadmium, Kadmiumlegierungen, Quecksilberlegierungen, Graphit, Glaskohlenstoff, Edelstahl, Platin verwendet werden. Als Anodenmaterialien kommen Platin, Graphit, Glaskohlenstoff, Nickelhydroxyperoxid, Bleidioxid, Rutheniumoxid/Titan in Frage.

15 Auf den Elektroden können durch galvanische Abscheidung sehr kontrolliert dünne Schichten von Metallen und Metalllegierungen aufgebracht werden. Durch diese Abscheidung kann die Oberfläche von Anode und Kathode, unabhängig voneinander, sehr kontrolliert mit unterschiedlichen Materialien modifiziert werden. Da für die Bedingungen einer elektrochemischen Umsetzung nur die Elektrodenoberfläche bestimmt ist, welche direkt mit der fluiden Phase in Kontakt tritt, kann der gesamte Reaktor so unterschiedlichen Reaktionsbedürfnissen angepasst werden. Die Schichtdicke des abgeschiedenen Metallfilms ist der Stromdichte pro Zeiteinheit direkt proportional. Man kann auf diese Weise auch den Elektrodenabstand regulieren. Die Schichten können je nach Bedarf wieder entfernt werden.

20 [0020] Bei der chemischen Prozessführung müssen diverse Parameter beachtet werden. Deshalb ist der Einbau von Sensoren, Reglern und Versorgungseinrichtungen in den Mikroreaktor vorgesehen, insbesondere zur Erfassung und Kontrolle der Temperatur, des Drucks, gegebenenfalls der Strömungsgeschwindigkeit, der Zellspannung, des Ladungstransfers und des Volumenstroms. Das Gehäuse weist entsprechende Durchführungen für diese Sensoren auf. Wenn möglich, werden diese Sensoren außerhalb des Mikroreaktorsystems angeordnet. Teilweise sind aber Sensoren 25 in den Funktionsmodulen unvermeidbar. Die Sensoren sind mit Regelkreisen verbunden, um den Betriebsablauf zu steuern und zu regeln. Die entsprechende Logik kann an dem Gehäuse angebaut sein oder sich außerhalb des Gehäuses befinden.

30 [0021] Die Erfindung wird anhand der Zeichnung beschrieben. Dabei zeigen:

- Fig. 1a einen erfindungsgemäßen Mikroreaktor (1) bestehend aus einer Arbeits- und einer Gegenelektrode in schematischer, auseinandergezogener Darstellung;
- Fig. 1b den erfindungsgemäßen Mikroreaktor (1) in seitlicher Ansicht;
- Fig. 2a einen erfindungsgemäßen Mikroreaktor (21) bestehend aus einem Wärmetauscher, einer Arbeits- und einer Gegenelektrode in schematischer, auseinandergezogener Darstellung;
- Fig. 2b den erfindungsgemäßen Mikroreaktor (21) in seitlicher Ansicht;
- Fig. 3 einen erfindungsgemäßen Mikroreaktor (31) bestehend aus zwei Wärmetauschern, einer Trennwand, einer Arbeits- und einer Gegenelektrode in schematischer, auseinandergezogener Darstellung.

40 [0022] In Fig. 1a ist die einfachste Anordnung eines erfindungsgemäßen elektrochemischen Reaktors (1) mit einer Arbeitselektrode (2) und einer Gegenelektrode (3) dargestellt. Während die Arbeitselektrode Bohrungen und Strukturierungen (sowie des Elektrodenmaterials als auch der aufgebrachten Isolierenden Beschichtung) aufweist, verfügt die Gegenelektrode lediglich über durchgehende Bohrungen. Der Elektrolyt, bestehend aus Lösungsmittel, den Edukten und ggf. Leitsatz, wird der Zelle durch die Zuführungsöffnung (7) zugeführt und gelangt zunächst in die Verteilerrinne (4). Dort wird sie gleichverteilt und gelangt anschließend in den zwischen der Anode und der Kathode liegenden Reaktionsraum (5) mit den Abstandhaltern (6). Im Reaktionsraum (5) werden die Reaktanten an den Elektrodenoberflächen zu den Produkten umgesetzt. Das Reaktionsgemisch wird anschließend in einer Ableitungsrinne (4') gesammelt und verlässt die Zelle durch die Abführungsöffnung (7'). Die Zu- bzw. Abfuhr der Fluide kann unabhängig voneinander durch die Bohrungen (7) bzw. (7') in der Arbeitselektrode (2) oder in der Gegenelektrode (3) erfolgen. Die jeweils nicht benutzte Bohrung wird verschlossen. Die Bohrungen (9, 9', 10 und 10') erfüllen in diesem einfachsten Aufbau keine Funktion.

45 [0023] Fig. 1b zeigt eine Seitenansicht des aus zwei Schichten aufgebauten elektrochemischen Reaktors (1). Die Bohrungen (7, 7', 9, 9', 10 und 10') sind zur besseren Übersichtlichkeit weggelassen. Wie aus Fig. 1b hervorgeht, ist zwischen den Elektroden eine nicht leitende und chemisch inerte Schicht (8) platziert. In der technischen Realisierung wird mindestens eine der Elektroden auf ihrer Oberfläche mit einer isolierenden, chemisch inerten Beschichtung versiehen. Diese isolierende Beschichtung (8) wird in einem zweiten Bearbeitungsschritt gezielt teilweise wieder entfernt, 50 so dass ein strukturierter Verbund aus Elektrode und isolierender Beschichtung resultiert.

- Die isolierende Beschichtung erfüllt mehrere Aufgaben: Sie dient als Abstandhalter zwischen den Elektroden und definiert den Reaktionsraum zwischen den Elektrodenoberflächen. Gleichzeitig dient sie als Abdichtung des Reaktionsraumes. Sie ist senkrecht so angeordnet, dass die Elektroden völlig parallel zueinander liegen, also an jeder Stelle der Reaktionszone völlig identische Abstände voneinander haben. Dadurch ist das elektrische Feld völlig homogen.
- 5 Dies ist besonders wichtig, da die Elektrodenabstände lediglich im μm -Bereich liegen und schon kleine Abweichungen aus der parallelen Anordnung große negative Effekte nach sich ziehen. Die isolierende Beschichtung fungiert zudem als Isolator zwischen Anode und Kathode und verhindert so Kurzschlüsse. Sie erbringt zudem die Abdichtung des Reaktionsraumes.
- [0024] Durch die Fixierung der isolierenden Beschichtung auf der Elektrodenoberfläche können im Reaktionsraum 10 Stützen von beliebiger Gestalt positioniert werden. Durch die Form dieser Stützen, z.B. kreis-, stromlinien-, rauten-, quader-, kasten-, stabförmig, eckig oder oval, kann zusätzlich die Strömungsverteilung im Reaktionsraum vorteilhaft beeinflusst werden. Dadurch entstehen laminare Strömungen, die eine enge Verweilzeitverteilung gewährleisten.
- [0025] Wie in Fig.1b weiterhin zu sehen, sind der Zuleitungskanal (4) und der Sammelkanal (4') mit der isolierenden Beschichtung (8) versehen. Dadurch wird verhindert, dass im Versorgungsbereich (Zu- und Abfuhröffnungen und Verteilbwz. Sammelvorrichtung) eine Reaktion stattfindet. Unerwünschte Erscheinungen wie ein Energieverlust oder eine inhomogene Stromdichtenverteilung und dementsprechend das Entstehen von unerwünschten Nebenprodukten werden dadurch vermieden. Der Teil (8) der isolierenden Beschichtung stellt die Einfassung des Reaktionsraumes dar. Der Teil (6) der isolierenden Beschichtung steht schematisch für die Stützen im Reaktionsraum (5). Fig. 1b zeigt auch die Stromversorgung (17) des Reaktors.
- [0026] Fig. 2a zeigt den Aufbau eines elektrochemischen Reaktors (21) mit einer Arbeitselektrode (2) einer Gegen-elektrode (3) und einem zusätzlichen Wärmetauscher (12), bestehend aus einer strukturierten Platte. Die Zufuhr des Temperiermediums erfolgt über eine Bohrung (10). Das Temperiermedium verteilt sich anschließend über den gesamten Wärmeaustauschraum (13) und wird durch eine Bohrung (10') wieder abgeführt. Das Temperiermedium kann auch durch Bohrung 10' zu- und durch Bohrung 10 abgeführt werden, also wahlweise im Gegenstrom oder im Gleichstrom 25 zum Reaktionsmedium geführt werden. Die Stützen (14) entstehen durch Bearbeitung der Wärmetauscherplatte und bestehen daher in der Regel aus dem gleichen Material wie dieser. Im Gegensatz dazu bestehen die Stützen (6) auf der Elektrode aus einem von dem Elektrodenmaterial in der Regel verschiedenen Beschichtungsmaterial. Der Wärmetauscher (12) kann den in Fig. 1a beschriebenen Aufbau auf zweierlei Art ergänzen: Er kann unterhalb der Arbeits-elektrode oder auf der unstrukturierten Gegen-elektrode angebracht werden, dann mit der strukturierten Seite nach unten.
- Auch können auf beiden Seiten der Elektroden, also oberhalb und unterhalb, Wärmetauscher angebracht werden. Die Entscheidung darüber, welcher Aufbau günstiger ist, kann in Abhängigkeit von der Wärmeleitfähigkeit der jeweils verwendeten Elektrodenmaterialien und/oder der Wärmetönung der durchzuführenden elektrochemischen Umsetzung ausfallen. In jedem Fall ist die gesamte Fläche der Reaktionszone vom Wärmetauscher abgedeckt.
- [0027] Dieses wird aus Fig. 2b deutlich, die eine Seitenansicht des Reaktors (21), bestehend aus einer mit einer isolierenden Beschichtung (8) versehenen Arbeitselektrode (2), einer Gegen-elektrode (3) und einem Wärmetauscher (12), zeigt. Die Zu- und Abfuhr der Reaktionsmischung erfolgt über die Bohrungen (7 bzw. 7') durch die Gegen-elektrode (3). Die Versorgung und Entsorgung des Temperiermediums erfolgt hier über die Bohrungen (10 bzw. 10') durch die beschichtete und strukturierte Arbeitselektrode (2) und die unstrukturierte Gegen-elektrode (3) hindurch, kann aber auch durch die Rückseite des Wärmetauschers erfolgen. Die nicht benutzten Bohrungen werden jeweils verschlossen. Die Bohrungen (9 und 9') finden in diesem Aufbau keine Verwendung. Die Fluidführung im Wärmetauscher kann, wie in Fig. 2b durch Pfeile angedeutet, im Gleichstrom zur Reaktionslösung erfolgen, aber auch im Gegenstrom erfolgen.
- [0028] Fig.3 zeigt den Aufbau eines elektrochemischen Mikroreaktors mit getrenntem Anodenraum und Kathodenraum, bestehend aus fünf Schichten, die aber aus lediglich drei verschiedenen Funktionseinheiten gebildet werden:
- 40 Eine beschichtete und strukturierte Arbeitselektrode (2) (Anode) und eine beschichtete und strukturierte Gegen-elektrode (2') (Kathode) werden durch ein gegebenenfalls mit Bohrungen versehenes Diaphragma (15) getrennt. Die Anode (2) und die Kathode (2') sind dabei identisch gearbeitet, aber die Kathode (2') ist in diesem Aufbau spiegelbildlich zur Anode, d.h. mit der strukturierten Seite nach unten gekehrt. So entstehen zwei Reaktionsräume, ein Anodenraum und ein Kathodenraum. Durch die spezielle, punktsymmetrische Strukturierung und die versetzten Bohrungen durch die identische gearbeiteten Platten (2 bzw. 2') können Anodenraum und Kathodenraum nun getrennt und unabhängig voneinander mit Elektrolyten (Anolyt bzw. Katholyt) versorgt werden: Die Zufuhr des Anolyten erfolgt in dem in Fig.3 dargestellten Aufbau über die Bohrungen (7), dessen Abfuhr über die Bohrungen (7'). Die Zufuhr des Katholyten erfolgt hingegen über die Bohrungen (9), dessen Abfuhr über die Bohrungen (9'). Die Versorgung und die Entsorgung der Elektrolyten kann, unabhängig voneinander, durch die entsprechenden Bohrungen des Wärmetauschers (12) oder durch die entsprechenden Bohrungen des Wärmetauschers (12') sowie den entsprechenden Bohrungen in den anderen Schichten erfolgen. Die nicht genutzten Bohrungen werden jeweils verschlossen. Die Zu- und Abfuhr des Temperiermediums für den Wärmetauscher (12) kann über die Bohrungen (11) bzw. (11') des Wärmetauschers (12) oder über die Bohrungen (11 bzw. 11') des Wärmetauschers (12') erfolgen. Die Fluidführung des Wärmetauschers (12)
- 45
- 50
- 55

erfolgt in diesem Beispiel im Kreuzstrom zu der Führung der Reaktionslösung. Die Zu- und Abfuhr des Temperiermediums für den Wärmetauscher (12') kann, unabhängig von der Zu- und Abfuhr des Temperiermediums für den Wärmetauscher (12), über die Bohrungen (10) bzw. (10') des Wärmetauschers (12) oder über die Bohrungen (10 bzw. 10') des Wärmetauschers (12') erfolgen. In diesem Fall können die Bohrungen beider Wärmetauscher über die entsprechenden Bohrungen der Elektroden (2 und 2') und des Diaphragmas (15) verbunden werden und es genügt ein Zufluss und ein Abfluss. Die Wärmetauscher (12) und (12') können prinzipiell im Gleich-, Gegen- oder Kreuzstrom betrieben werden.

5 [0029] Wird ein Diaphragma (15) ohne die Bohrungen (10) und (10') bzw. (11) und (11') verwendet, erfolgt die Zu- und Abfuhr des Temperiermediums für die Wärmetauscher (12) und (12') über die Bohrungen (10) und (10') bzw. (11) und (11') des gleichen Wärmetauschers. Die nicht benutzten Bohrungen werden verschlossen.

10 [0030] Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung eines erfindungsgemäßen Mikroreaktors, welches die folgenden Schritte umfasst:

15 (a) Einbringung von Ausnehmungen auf der Oberfläche des Elektrodenmaterials, so dass Verteilungs- bzw. Sammelstrukturen entstehen.

(b) Erstellen einer Maske, die Aussparungen an denjenigen Stellen aufweist, an denen die Elektrodenoberfläche mit Isolationsmaterial beschichtet werden soll, anschließend festes Aufbringen des Isolationsmaterials durch die Maske auf mindestens eine Elektrodenoberfläche und Entfernen der Maske oder, alternativ, festes Aufbringen einer flächendeckenden Isolationsschicht auf mindestens eine Elektrodenoberfläche und partielles Entfernen des isolierenden Beschichtungsmaterials. Die so entstehenden Verteilungs- bzw. Sammelstrukturen bilden zusammen mit den freien Oberflächen der Elektroden Räume aus, in denen die Reaktanten zugeführt, verteilt, einem elektrischen Feld ausgesetzt und die Produkte gesammelt und abgeführt werden können.

20 (c) Zusammenfügen der Elektroden und gegebenenfalls Wärmetauscherelemente und/oder Trennwände; und
(d) Anschluss der Stromzufuhr und gegebenenfalls Sensoren.

25 [0031] Die Strukturierung der Oberfläche einer oder mehrerer Elektroden erfolgt in Schritt (a) vorzugsweise durch mikrotechnische Prozesse:

30 Mikrfunkenerosion, Nassätzen, Verfahren zu elektrolytischen Ätzen wie Elektropolierung, Mikrosenkerosion, ECM, galvanische Abscheidung und Abformung, chemische und elektrochemische Beschichtungs- und Abscheidungsverfahren, Laserschneiden und -strukturieren.

35 [0032] In Schritt (b) wird gegebenenfalls eine zuvor gefertigte Maske aufgebracht und die gesamte Elektrodenoberfläche, einschließlich der in Schritt (a) ausgebildeten Bereiche, beschichtet. Die strukturierten Bereiche werden dabei genauso dick beschichtet wie die unstrukturierte Plattenoberfläche.

40 [0033] Als Materialien für die isolierende Beschichtung eignen sich nichtleitende Kunststoffe, die auch bei erhöhten Temperaturen gegen aggressive Chemikalien oder Lösungsmittel inert sind. Bevorzugt sind Polypropylen, Polyimide und fluorierte Kohlenwasserstoffe wie z.B. PTFE, PVDF, PCTFE, PFA und FEP, insbesondere Polytetrafluoroethylen.

[0034] Der Prozess des Beschichtens läuft in folgenden Teilschritten ab:

1. Thermisches Entfetten der Elektrodenoberfläche, gegebenenfalls Aufbringen einer Maske
2. Anrauen der Oberfläche (Sandstrahlen)
3. Auftragen des Beschichtungsmaterials im Sprühverfahren (Für dicke Schichten mehrmaliges, schichtweises Aufsprühen im Sprühverfahren oder einmaliges Aufbringen mittels Laminationsverfahren)
4. Trocknung (evtl. Aufbringen weiterer Schichten und anschl. Trocknung)
5. Sintern
6. Langsames Abkühlen

50 [0035] Alternativ kann die Beschichtung in folgenden Teilschritten erfolgen:

1. Thermisches Entfetten der Elektrodenoberfläche, gegebenenfalls Aufbringen einer Maske
2. Grundierung
3. Elektrostatisches Auftragen von Lackpulver
4. Trocknung (evtl. Aufbringen weiterer Schichten und anschl. Trocknung)
5. Sintern bei 390-400°C
6. Langsames Abkühlen

In Schritt (c) werden diejenigen Stellen auf der Oberfläche freigelegt, die als Elektrode fungieren sollen. Der

auf der Plattenoberfläche verbleibende Teil der Beschichtung dient gleichzeitig als Abstandhalter, Abdichtung und als Fluidführung, definiert also den Reaktionsraum.

5 [0036] Durch diese Art der Fertigung können in den Zu- und Ablaufrinnen keine unerwünschten Reaktionen ablaufen.

[0037] Beim Prozess des partiellen Entfernen der isolierenden Beschichtung läuft bevorzugt in folgenden Schritten ab:

10 1. Erstellung einer Maske

2. Verdampfen von Teilen der isolierenden Beschichtung mittels LASER, dessen Frequenz auf das Material ab-
gestimmt ist, entsprechend der Vorgaben der Maske und damit Freilegung der Elektrodenoberfläche

15 [0038] Das partielle Entfernen der isolierenden Beschichtung auf der Elektrodenoberfläche kann auch durch Ätzen oder Stanzen erfolgen.

20 [0039] In Schritt (d) werden die einzelnen Lagen derart übereinander gestapelt, so dass eine völlig flüssigkeitsdichte Verbindung zwischen den Lagen mit Fluidführungen und Trennwänden entsteht. Der Vorteil dieses Verfahrens besteht in der extrem einfachen und damit kostengünstigen Ver- und Bearbeitung der Einheiten.

25 [0040] Um sich wechselnden Erfordernissen anpassen zu können, gibt es auch unterschiedlich große Gehäuse mit Gehäusedeckel, um eine unterschiedliche Anzahl von Funktionsmodulen aufnehmen zu können. Diese Auswahl aus möglichen Komponenten ermöglicht es zum einen, die Kapazität des Gesamtreaktors durch einfache Stapelung von identischen Einheiten zu erhöhen, ohne die Einzelreaktoren zu vergrößern. Zum anderen können gegebenenfalls einzelne Komponenten ausgetauscht werden, wenn deren Funktion als nicht optimal erkannt wird, oder wenn ein Fehler auftreten sollte.

30 [0041] Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist daher ein Modular aufgebautes System zur Herstellung eines erfindungsgemäßen Mikroreaktors zur Durchführung chemischer Reaktionen, welches folgende Funktionsmodule umfasst:

a. einen Satz von zwei oder mehreren Elektroden, wobei die Oberfläche mindestens einer Elektrode fest mit einer definiert ausgestalteten elektrisch isolierenden Beschichtung (8) verbunden ist;

35 b. gegebenenfalls einen Satz von einem oder mehreren Platten oder Schichten, die als Wärmetauscher oder Peltierelement eingesetzt werden können;

c. gegebenenfalls eine oder mehrere Platten, die als Trennwände eingesetzt werden können;

d. elektrische Anschlüsse;

e. Zu- und Ableitungen für Reaktanten, Produkte und Wärmetauschermedien;

f. gegebenenfalls eine oder mehrere Vorrichtungen, in der die einzelnen Elektroden, Platten oder Schichten passgenau, in unterschiedlichen, geeigneten Reihenfolgen gestapelt werden können; und

40 g. Vorrichtungen zum Befestigen der Elektroden, Platten oder Schichten.

[0042] Aufgrund eines solchen Modular aufgebauten Systems ist der Anwender in der Lage, den Mikroreaktor seinen Bedürfnissen entsprechend anzupassen.

45 [0043] Extrem exotherme Reaktionen lassen sich zum Beispiel durch den Einsatz mehrerer hintereinandergeschalteter Wärmeaustauschermodule besser beherrschen. Langsame Reaktionen können zum Beispiel durch den Einbau weiterer Funktionsmodule mit Verweil- und/oder Temperierfunktion optimiert werden.

[0044] Insgesamt wird mit der Erfindung ein modular aufgebautes, miniaturisiertes Reaktionssystem für elektrochemische Reaktionen zur Verfügung gestellt, das folgende Vorteile aufweist:

45 - Durch eine auf den Elektrodenoberflächen aufgebrachte und mit Strukturen versehenen Schicht werden die Elektroden in einem exakt definierten und konstanten Abstand parallel zueinander angeordnet. Dadurch können keine Feldinhomogenitäten auftreten, wodurch eine erhöhte Selektivität erreicht wird

50 - Die strukturierte Schicht dient gleichzeitig als Abstandhalter und als Abdichtung des Reaktionsraums. Es muss also keine weitere Dichtmasse aufgebracht werden

- Durch die Abmessungen und die Form der Abstandhalter wird eine hohe effektive Elektrodenoberfläche und damit eine höhere Raum-Zeit Ausbeute erzielt

55 - Aufgrund der geringen Elektrodenabstände lassen sich Synthesen auch in schlechtleitenden Elektrolyten durchführen. Aufgrund der im Extremfall bis auf den Elektrodenabstand reduzierten Diffusionsschicht werden diffusionskontrollierte Reaktionen beschleunigt. Das durch den kleinen Elektrodenabstand bedingte geringe Volumen

des Reaktionsraumes ermöglicht eine effektivere Kontrolle und Steuerung der Temperatur des Reaktionsraums (und dadurch die Unterdrückung von Neben- und Folgereaktionen)

- Die punktsymmetrische Versetzung der Ein- und Auslassbohrungen an den Enden des Ein- und Auslasssammelkanals ermöglicht es, identisch gefertigte Platten durch Klappen um 180° die Bohrungen so übereinander zu stapeln, dass in einem Reaktor mit mindestens zwei Reaktionskammern verschiedene Reaktionslösungen durchgeleitet werden können (Fig.3). Mit 'Klappen', soll hier und im folgenden eine Drehung um die Längsachse bezeichnet werden. Beim Stapeln zweier um 90° in der Ebene gedrehter, identisch gefertigter Platten kommen diese so übereinander zu liegen, dass in einem Reaktor mit mindestens zwei Reaktionskammern verschiedene Reaktionslösungen durchgeleitet werden können. Auch die Wärmetauscherplatten sind punktsymmetrisch aufgebaut und können um 90° in der Ebene verdreht in einen Plattenstapel eingefügt werden, so dass sie gegebenenfalls mit verschiedenen temperierten Temperiermedien beschickt werden können. Die Bohrungen zur Zu- bzw. Abfuhr der Rektions- bzw. der Temperiermedien in den gestapelten Funktionseinheiten kommen aber stets so übereinander zu liegen, dass die Zufuhr bzw. Abfuhr dieser Medien jeweils über lediglich eine Zu- bzw. Ableitung erfolgen kann.
- Durch die spezielle Geometrie der einzelnen Platten kann durch deren Kombination so aus nur wenigen Funktionsmodulen eine große Anzahl verschiedener Reaktoren zusammengesetzt werden
- Durch Aufbringen einer Beschichtung auf der Elektrodenoberfläche und deren anschließende gezielter Entfernung können im Reaktionsraum Abstandhalter von weit variierbarer Form geschaffen werden
- Die Möglichkeit einer breiten Variierung der Abstandhalter in deren Form und Anordnung führt zur Vermeidung einer Verstopfungsgefahr, wie sie bei Kanälen auftritt
- Durch das Aufbringen einer fixierten Beschichtung entfällt die schwierige und zeitaufwendige Positionierung im Vergleich einer Anordnung, bei der zwischen zwei Elektroden eine dritte Schicht als Isolator, Abstandhalter und zur Ausbildung von Reaktionsräumen eingebracht wird
- Da Medien und Strom nur von der Ober- bzw. Unterseite des Plattenstapels, nicht aber von der Seite zugeführt werden, können sehr dünne Elektroden verwendet werden

[0045] Weiterhin Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Durchführung elektrochemischer Reaktionen, wobei man ein oder mehrere chemische Reaktanten, insbesondere elektroaktive organische Verbindungen, in flüssiger Form in einen erfindungsgemäßen Mikroreaktor leitet und im Bereich des zwischen den beiden Elektroden (2, 3) gebildeten Raumes (5), in der die isolierende Beschichtung (8) teilweise gezielt entfernt ist, einem elektrischen Feld ausgesetzt.

[0046] Der Begriff "fluide Form" umfasst sowohl Reaktanten, die selbst in einem flüssigen Aggregatzustand vorkommen, als auch Reaktanten, die in einem Gemisch mit einem fluiden Verdünnungsmittel eingesetzt werden. In einer besonders bevorzugten Ausführungsform wird mindestens eine elektroaktive Verbindung, vorzugsweise eine leicht oxidierbare oder reduzierbare organische Verbindung, gegebenenfalls in Gegenwart von mindestens einem vergleichsweise schwer oxidierbaren bzw. reduzierbaren Lösungsmittel in einem erfindungsgemäßen Mikroreaktor einem elektrischen Feld ausgesetzt. Bevorzugte Lösungsmittel sind solche, die gegenüber der eingesetzten Spannung und Stromdichte inert sind, vorzugsweise gegebenenfalls halogenierte aliphatische oder aromatische Kohlenwasserstoffe wie zum Beispiel Hexan, Cyclohexan, Dichlormethan, Tetrachlormethan, Benzol oder Chlorbenzol; oder Ether wie zum Beispiel Diethylether, *tert*-Butylmethylether, Dioxan oder Tetrahydrofuran; Ketone oder Amide wie zum Beispiel Aceton, Methylmethyleketon, Dimethylformamid oder N-Methylpyrrolidon; oder Alkohole wie zum Beispiel Methanol, Ethanol, Propanol, Isopropanol oder Butanol; oder Acetonitril oder Wasser oder Gemische aus diesen Verdünnungsmitteln.

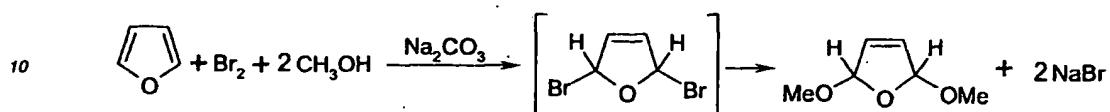
[0047] Um das Verständnis der vorliegenden Erfindung zu erleichtern, werden die nachfolgenden illustrativen Beispiele für mögliche Reaktionstypen dargelegt. Beispiele für erfindungsgemäße Reaktionen sind die Methoxylierung von Furan oder die Reduktion von Aceton zu Pinakol. Die vorliegende Erfindung ist nicht beschränkt auf diese spezifischen Ausführungsformen, sondern umfasst den vollen Umfang der Patentansprüche.

50

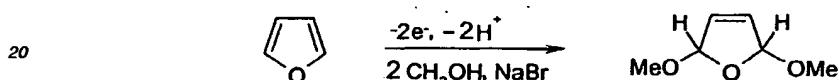
55

Beispiel 1 - Synthese von 2,5-Dimethoxy-2,5-DihydrofuranKonventionell

5 [0048]

Elektrochemisch:

15 [0049]

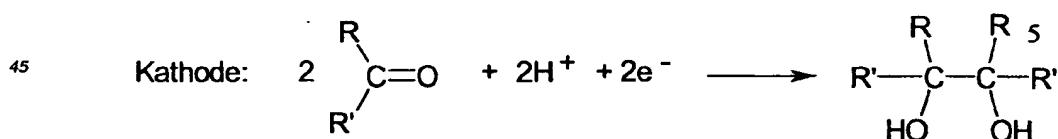
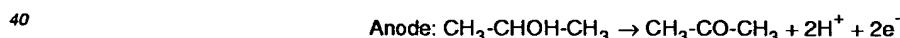


25 200ml Furan und 5,1g (0,05 mol) NaBr werden in 800ml MeOH gelöst. Die Lösung wird in einem erfindungsgemäßen Mikroreaktor bei einer Temperatur von 5°C, einem Fluss von 1 ml/min und einer Stromdichte von 20,8 A/dm² anodisch oxidiert. Das Natriumbromid dient dabei als Mediator. Anschließend wird das MeOH abdestilliert. Das bei diesem Prozeß aus dem Rückstand ausfallende NaBr wird durch Filtration zurückgewonnen. Man erhält das Produkt 2,5-Dimethoxy-2,5-Dihydrofuran mit einer Ausbeute von 96%.

	Elektrochemisch	Elektrochemischer Mikroreaktor
30 Stoffausbeute	85%	96%
Stromausbeute	80-85%	92%
Energieverbrauch	2,5 kWh/Kg	1,76 kWh/Kg

35 Beispiel 2 - Reduktion von Aceton zu Butyl-2,3-diol (Pinakol)

[0050]



50 Eine Mischung, bestehend aus 10 Gew.-% Aceton, 79,75 Gew.-% Isopropanol, 10 Gew.-% Wasser und 0,25 Gew.-% Tetrabutylammoniumhexafluorophosphat als Leitsalz wird bei einem Fluss von 10 ml/min, einer Stromdichte von 20,8 A/dm², einem pH-Wert von 2-3 und einer Temperatur von 20°C durch den erfindungsgemäßen elektrochemischen Mikroreaktor gepumpt. Das an der Anode durch eine Zweielektronenoxidation gebildete Aceton wandert zur Kathode und wird durch eine Einelektronenreduktion zum entsprechenden Radikalanion, welches dimerisiert und unter den sauren Bedingungen zu Pinakol umgesetzt wird. Nach Neutralisation der Reaktionsmischung mit 1 N NaOH wird die Reaktionsmischung eingeengt. Das nach Zufügen von 10 ml Wasser bei 0°C auskristallisierende Pinakol-Hydrat wird mit Eiswasser gewaschen. Die Gesamtausbeute an Pinakol beträgt 87% der Theorie. Die Gesamtstromausbeute beträgt 56%.

Patentansprüche

- 5 1. Mikroreaktor für elektrochemische Umsetzungen, welcher mindestens zwei planparallel zueinander angeordnete Elektroden aufweist, **dadurch gekennzeichnet, dass** mindestens eine Elektrode mit einer definiert ausgestalteten, fest mit der Elektrodenoberfläche verbundenen Isolationsschicht versehen ist.
- 10 2. Mikroreaktor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Isolationsschicht als Dichtung und/oder als Abstandshalter fungiert.
- 15 3. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** durch gezieltes Auftragen einer Isolationsschicht über eine Maske auf mindestens einer Elektrodenoberfläche oder durch gezieltes partielles Entfernen von Teilen einer zuvor flächendeckend auf mindestens einer Elektrodenoberfläche aufgebrachten und mit ihr fest verbundenen Isolationsschicht mindestens ein Reaktionsraum definiert wird.
- 20 4. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** er folgende Komponenten umfasst:
- (a) mindestens eine Arbeitselektrode (2);
 - (b) mindestens eine Gegenelektrode (3);
 - (c) Vorrichtungen zum Zu- und Abführen (4, 4', 7, 7', 9, 9') von Reaktanten und Produkten;
 - (d) einen durch die Elektrodenoberflächen und Aussparungen in der Isolationsschicht definierten Reaktionsraum.
- 25 6. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die beschichtete Elektrode
- (i) mindestens eine Rinne (4) zur Verteilung des Eduktes; und
 - (ii) mindestens eine Rinne (4') zum Sammeln des Produkts; sowie
 - (iii) mindestens einen die beiden Rinnen (4, 4') verbindenden Reaktionsraum (5) aufweist.
- 30 7. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Bereiche (i) und (ii) vollständig mit der Isolationsschicht bedeckt sind und im Bereich (iii) die Oberfläche der Elektrode freigelegt ist.
- 35 8. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** die isolierende Be- schichtung im Bereich (iii) so ausgestaltet wird, dass im die Rinnen (4, 4') verbindenden Raum (5) an mehreren Stellen Stützen (6) ausgebildet werden.
- 40 9. Mikroreaktor nach Anspruch 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Form der Stützen (6) zur Optimierung der Strömungsverteilung gestaltet wird.
- 45 10. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** durch eine geeignete Anordnung mehrerer identischer Platten eine Vervielfachung identischer Funktionsräume erreicht wird, wobei diese je nach Bedarf
- a) parallel (nebeneinander) oder
 - b) in Serie (hintereinander) geschaltet werden können.
- 50 11. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** Anoden- und Ka- thodenraum durch Einbringen einer Trennwand (15) voneinander getrennt sind.
- 55 12. Mikroreaktor nach einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet, dass** durch Stapelung um 90° gedrehter und/oder um 180° geklappter, punktsymmetrischer Funktionseinheiten die Ein- und Auslassbohrungen so übereinander zu liegen kommen, dass ein unabhängiger Zu- und Abfluss von je zwei Reaktions- bzw. Temperiermedien erfolgen kann und die Medien wahlweise im Gleich-, Gegen- oder Kreuzstrom betrieben werden können.
13. Verfahren zum Herstellen eines Mikroreaktors nach einem der Ansprüche 1 bis 12, welches die folgenden Schritte umfasst:

- (a) Strukturieren der Elektrodenoberfläche durch Einbringen von Rillen und Bohrungen in das Elektrodenmaterial,
5 (b₁) Erstellen einer Maske, die Aussparungen an denjenigen Stellen aufweist, an denen die Elektrodenoberfläche mit Isolationsmaterial beschichtet werden soll, anschließend festes Aufbringen des Isolationsmaterials durch die Maske auf mindestens eine Elektrodenoberfläche und Entfernen der Maske oder
(b₂) festes Aufbringen einer flächendeckenden Isolationsschicht auf mindestens eine Elektrodenoberfläche und partielles Entfernen des isolierenden Beschichtungsmaterials,
10 (c) gegebenenfalls Herstellung von Wärmetauscherelementen durch Strukturieren von Wärmetauscherplatten analog (a).
(d) Zusammenfügen der beiden Elektroden und gegebenenfalls von Wärmetauscherelementen und/oder Trennwänden; und
(e) Anschluss der Stromzufuhr und gegebenenfalls von Sensoren.

14. Verfahren nach Anspruch 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** die Isolationsschicht zwischen jeweils zwei Elektroden so ausgestaltet ist, dass sie zusammen mit den freiliegenden Elektrodenoberflächen Räume ausbilden, 15 in denen die Reaktanten zugeführt, verteilt, einem elektrischen Feld ausgesetzt und die Produkte gesammelt und abgeführt werden können.

15. Modulares System zur Herstellung eines Mikroreaktors zur Durchführung elektrochemischer Reaktionen nach 20 einem der Ansprüche 1 bis 12, welcher folgende Teile umfasst:

- (a) einen Satz von zwei oder mehreren Elektroden, wobei die Oberfläche mindestens einer Elektrode fest mit einer strukturierten Isolationsschicht (8) verbunden ist;
25 (b) gegebenenfalls einen Satz von einem oder mehreren Platten oder Schichten, die als Peltierelement eingesetzt werden können, oder deren Oberfläche so strukturiert ist, dass sie von Wärmetauschermedien durchflossen werden können;
(c) gegebenenfalls eine oder mehrere Platten, die als Trennwände eingesetzt werden können;
(d) elektrische Anschlüsse;
30 (e) Zu- und Ableitungen für Reaktanten, Produkte und Wärmetauschermedien;
(f) gegebenenfalls eine oder mehrere Vorrichtungen, in der die einzelnen Elektroden, Platten oder Schichten passgenau, in unterschiedlichen, geeigneten Reihenfolgen gestapelt werden können; und
(g) Vorrichtungen zum Befestigen der Elektroden, Platten oder Schichten.

35 16. Verfahren zur Durchführung elektrochemischer Reaktionen, **dadurch gekennzeichnet, dass** ein oder mehrere chemische Reaktanten in flüssiger Form in einen Mikroreaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 12 eingeleitet und im Bereich des zwischen den beiden Elektroden (2, 3) gebildeten Raumes (5), in der die Isolationsschicht (8) gezielt in ihrer ganzen Schichtdicke entfernt ist, einem elektrischen Feld ausgesetzt werden.

40

45

50

BEST AVAILABLE COPY

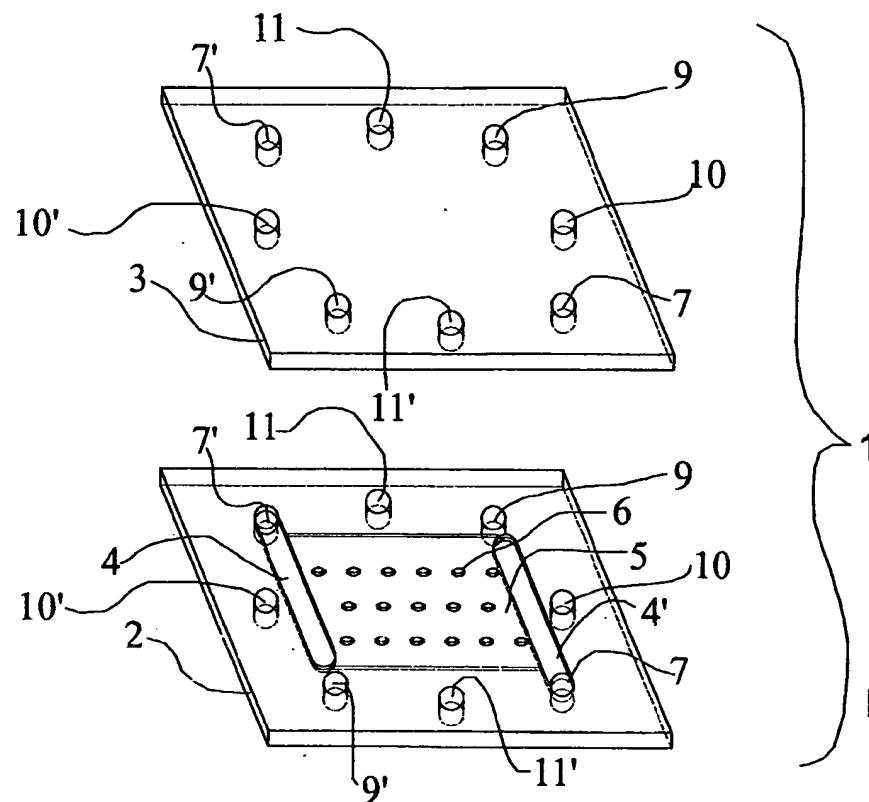


Fig. 1a

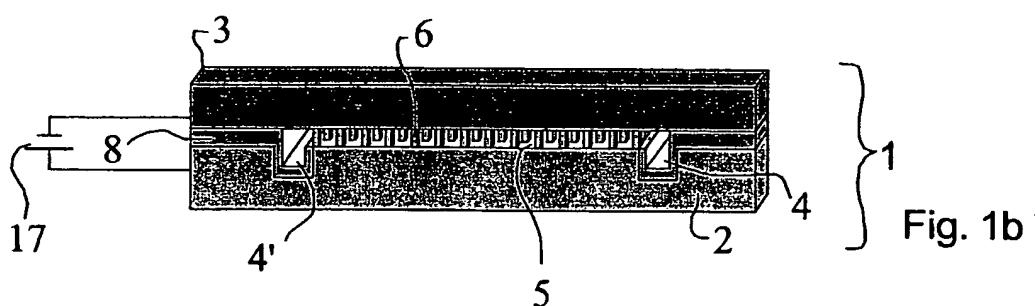
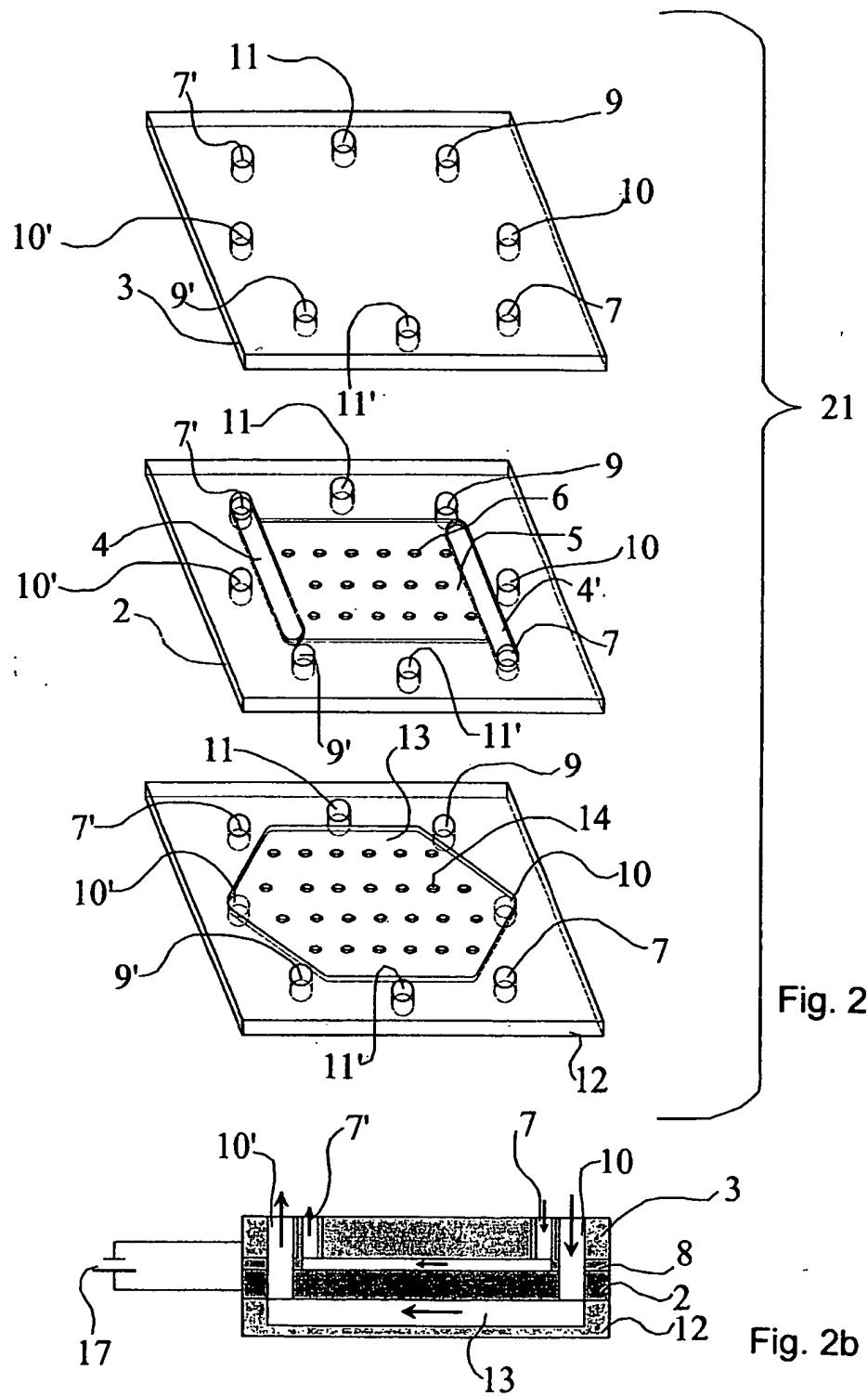


Fig. 1b



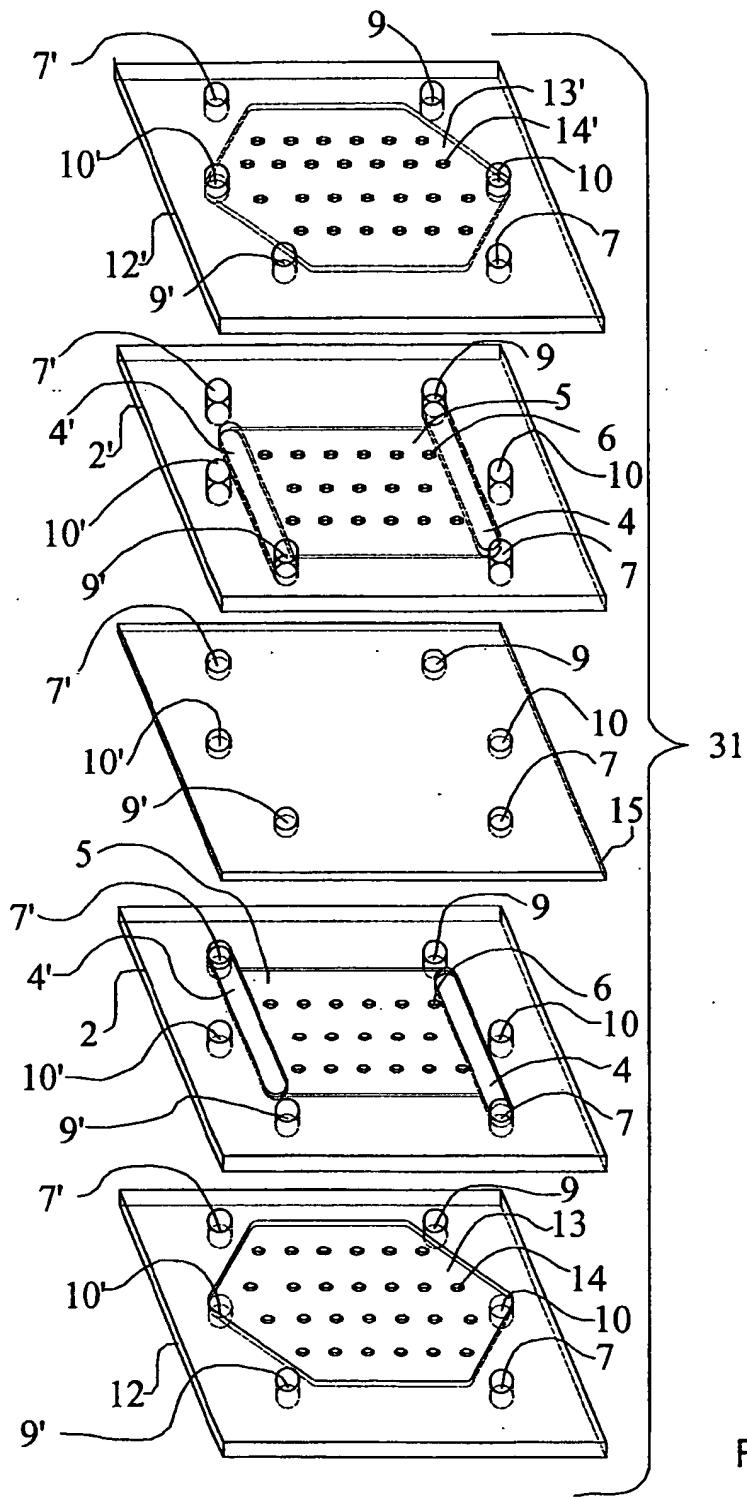


Fig. 3